



TITLE:

CeB_6の電気抵抗,磁性及び超音波吸収(II. CeB_6の特性,価数揺動状態の総合的研究,科研費研究会報告)

AUTHOR(S):

小松原, 武美; 小黒, 勇; 佐藤, 憲昭; 国井, 暁; 鈴木, 孝;
糟谷, 忠雄

CITATION:

小松原, 武美 ...[et al]. CeB_6の電気抵抗,磁性及び超音波吸収(II. CeB_6の特性,価数揺動状態の総合的研究,科研費研究会報告). 物性研究 1982, 37(5): 9-13

ISSUE DATE:

1982-02-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/90481>

RIGHT:

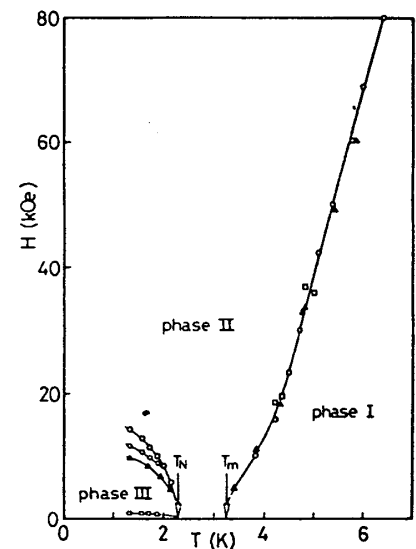
CeB₆の電気抵抗, 磁性及びα超音波吸収

筑波大 物質工, 小松原武美, 東京大 物性研, 小黑勇
東北大 理, 佐藤憲昭, 国光曉, 鈴木孝, 糟谷忠雄

Ce磁性化合物はCe ionが結晶格子内に周期的に配列され, 高密度にありながら, 希薄合金系のKondo stateに起因する諸物性と類似の振舞いをする結果が多く報告され, 価数振動状態を示す稀土類磁性化合物の中で, 異常な電子相関を示す系(dense Kondo system)として興味ある研究対象である。その中で, CeB₆はdense Kondo systemにある最も典型的な磁性化合物である。CeB₆の結晶構造は立方晶系のCaB₆型で, 6個のBで構成する正八面体が単純立方格子を作り, その体心にCe ionが3価の状態と結合している。3価のCe ionは4f¹の電子配位であり, Hund's ruleによるground stateは²F_{5/2}であるが, 立方対称性の結晶場により, doublet Γ₇とquartet Γ₈に分裂する。磁化測定の結果,^{1), 2)} doublet Γ₇がground stateにあり, 異方的exchange interactionが重要な役割を果たし, doublet間のexchange interactionは小さいと解析されている。³⁾ 常圧融法により, 大型の純良単結晶が育成され, 多面的な研究が行われた結果, 中1図に示されるようなphase I, II及びα IIIを含む磁気相図が提唱されている。⁴⁾ dense Kondo stateの起因を解明することとが我々の研究目的であるが, ここでは, 電気抵抗, 磁性, 及びα相転移に關する超音波吸収の結果と現状について報告する。

§ 1. 電気抵抗.

CeB₆の電気抵抗ρは, Kondo stateに起因するdilute alloy系のρ_{mag.}と類似の温度変化を示す。



中1図. CeB₆の磁気相図。⁴⁾

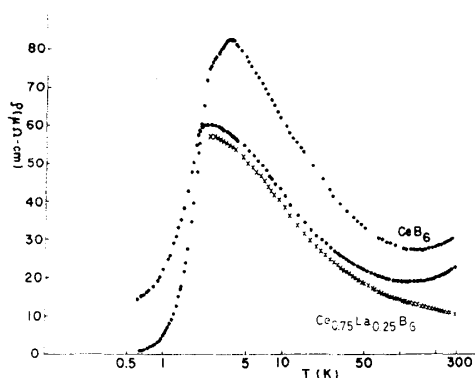
し、300Kから5Kまで $\log T$ で変化する。5K以下では、 $T_N = 2.2K$ の反強磁性的秩序の出現の影響を受け、3.15Kで ρ は max. peak を示し、 T_N で鋭く変曲し、低温で急激に減少する。¹⁾ 5K以上の温度範囲では、

$$\rho_{mag.} = \rho(eB_6) - \rho(LaB_6)$$

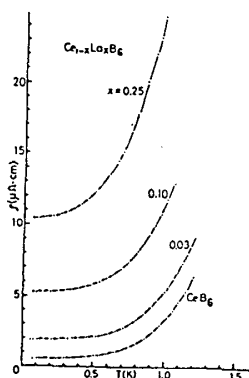
$$= A + (B/2) \{1 - \ln(T/T_K) / [\ln^2(T/T_K) + \pi^2 S(S+1)]^{1/2}\}, \quad (1)$$

の表式とよい対応を示す。⁴⁾ ここで、 $A = \rho_u \sin^2 \delta$, $B = \rho_u \cos 2\delta$ であり、 ρ_u は unitary limit 抵抗である。(1)式は dilute alloy 系の $\rho_{mag.}$ の温度変化を現象論的によく説明できる表式であるが、dense Kondo state にある CeB_6 の $\rho_{mag.}$ の温度変化が(1)式で $\rho_u \approx 110 \mu\Omega\text{-cm}$, $T_K \approx 9K$ としよく解析できることは興味あることである。dense Kondo site の特性を解明することを目指し、非磁性で3価を示す La を Ce で置換する系、 $(Ce_{1-x}La_xB_6)$ を育成した。この系では conduction electron は不変で Kondo site の濃度を変えることができる。 $x=0.25$ の抵抗を測定した結果を $x=0 (CeB_6)$ と比較して半2図に示す。この結果を(1)式で解析した結果、 ρ_u と T_K は CeB_6 の場合の約75%の結果でよく説明できる。⁵⁾ この結論から、 CeB_6 の Kondo state は高密度にあっても互に干渉効果を及ぼすことなく、独立に振舞うから conduction electron と散乱するという興味ある結果が得られた。

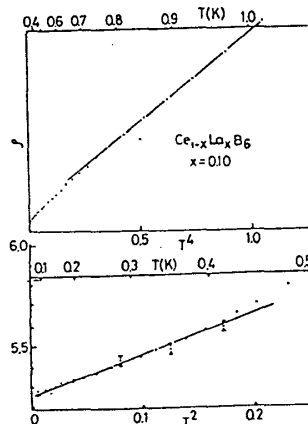
Kondo lattice state が形成される低温領域、2K以下における $Ce_{1-x}La_xB_6$ の抵抗は半3図のような温度変化を示す。半4図に $x=0.1$ の場合を例とし



半2図. CeB_6 と $Ce_{0.75}La_{0.25}B_6$ の電気抵抗。⁵⁾

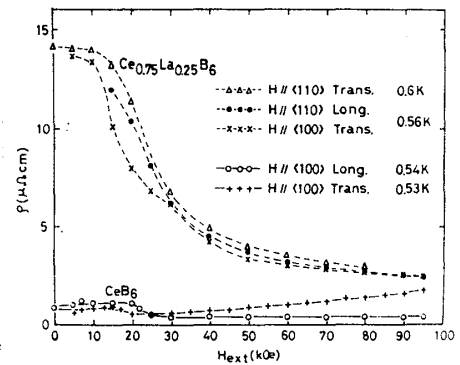


半3図. $Ce_{1-x}La_xB_6$ の電気抵抗。



半4図. 抵抗の温度変化。

て示すが, ρ は $T < 0.4\text{K}$ で T^2 , $0.4\text{K} < T < 1\text{K}$ で T^4 で変化する。しかし, $x=0.25$ では T^2 で変化する温度範囲が低温側に狭くなり, 高温では T^4 より弱い $T^{2.7}$ で変化する温度範囲が広がる。これらの温度変化は La 置換したことによる impurity 効果と Coherent Kondo lattice の intrinsic excitation の双方が同時に関与していることを考察して統一的に解析される必要がある。一方, 残留抵抗は La の置換量 x に比例して増加する。その起因は結晶の不完全性及不純物の存在による散乱と異なり, 置換した La の site で coherent Kondo state が破壊されることにより付加的に発生した散乱と考えられる。従って, 磁化と磁場を飽和させることにより, 残留抵抗を減少させることが出来る。 $x=0.25$ では, 中5図に示されるように $H=0$ のときの $13.7\mu\Omega\text{-cm}$ から 95K での $2.7\mu\Omega\text{-cm}$ まで急激に減少を示すが, CeB_6 では磁気抵抗は phase II で殆んど変化せず一定である。



中5図. CeB_6 と $\text{Ce}_{0.75}\text{La}_{0.25}\text{B}_6$ の磁気抵抗。(T=0.5K)

$T > T_K$ では CeB_6 の dense Kondo state は

Kondo site が互に干渉することなく, 相互作用も小さく, 独立に振舞うが, $T > T_K$ では複雑な電子相関を示すことが明らかにされた。

§. 5. 磁気的挙動。

立方対称性の結晶場により分裂した準位の ground state を知るため, CeB_6 の磁化¹⁾と帯磁率²⁾が測定された。その結果, 真電荷 model とは逆に doublet Γ_7 が ground state であることが判明した。帯磁率の測定結果を理論的に考察した結果, 結晶場分裂の大きさは約 50K ほど, Γ_7 間の exchange は小さく, Γ_8 間及び Γ_7 - Γ_8 間の exchange は異方的で, 共に反強磁性的で大きいことが報告された。³⁾ 磁化過程は中6図(a)及び(b)に示されるように, T_K 以下の phase III では反強磁性秩序を反映して複雑な振舞いをする。しかし, phase II の高磁場中では Γ_7 が ground state ($0.7\mu_B/\text{Ce}$) とし, 磁化は磁場と共に増加

するが、強い異方性を示す。Phase I 2' は、磁化は常微分的に磁場と共に直線的に増加するが、Phase II 2' は、早い飽和の傾向を示し short range order の存在を示唆する。又高磁場中2'。磁化は温度によらず一つの磁化過程に収束して増加する傾向を示す。

前節で述べたように、Laを置換した系について研究した結果、Kondo効果に寄与しているCe-site間の干渉効果は少く、Kondo siteは独立に振舞うことを見出されたが、磁気的挙動を観測した結果をFig 7に帯磁率と、Fig 8に磁化を示す。帯磁率はLaの置換により θ_p が CeB_6 の-62 Kから $x=0.25$ で-52 Kに減少し、又、有効Bohr磁数は若干増加しているが、全般的に磁性ionのdilution効果として解釈され、exchangeの機構は変わっていないことと示唆している。又、磁化過程は相転移境界がLaの置換によりshiftしていることを考慮すると、Ce-ion当りの磁気モーメントは5%程度大きくなっているが、磁化の発現起因は CeB_6 と同様であると考えられ、Ce-siteは不変である。更に、又を変えた系、及び非磁性ionを変えて系統的な研究が期待される。

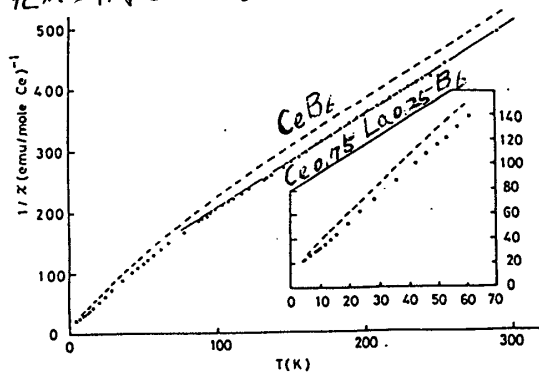


Fig 7. CeB_6 と $\text{Ce}_{0.75}\text{La}_{0.25}\text{B}_6$ の帯磁率の温度変化。

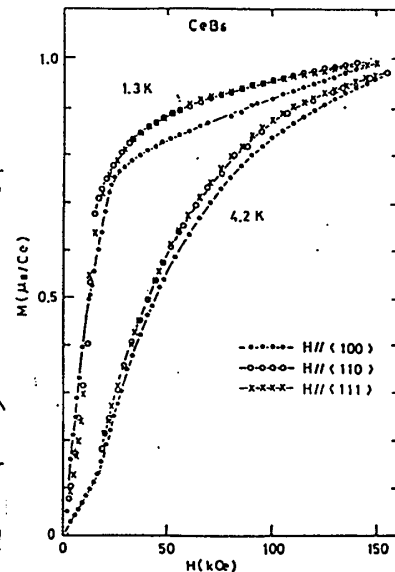


Fig 8(a). 低磁中の磁化過程 (東大物理研 150 K ガウスメーター)。

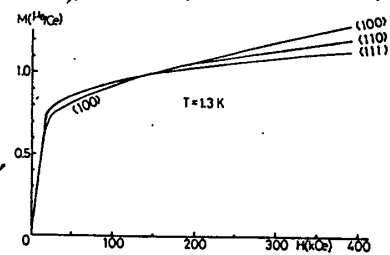


Fig 8(b). 高磁中の磁化過程 (阪大強磁場パルスマグネット)。

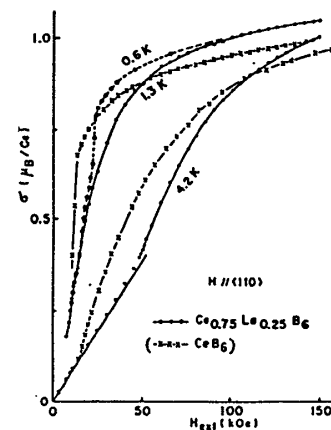
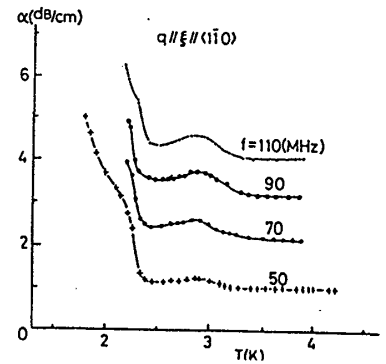


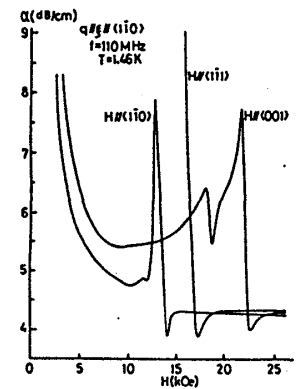
Fig 8. CeB_6 と $\text{Ce}_{0.75}\text{La}_{0.25}\text{B}_6$ の磁化過程。

§.3. 超音波吸収.

各種の測定手段が得られた結果に基づいて、
 第1回に示されるような磁気相図が提唱されている。
 phase boundaryでの相転移に伴う超音波吸収係数 α を観測した。 $H=0$ での $\alpha-T$ の結果を第9図に示す。抵抗に peak を示す 3.15 K 近傍では小さな broad peak を示すのみで、 $H \neq 0$ での peak は消失する。更に I-II boundary では α の異常 peak は観測されず、磁氣的相転移線として異常である。 $T=T_N$ で α は臨界吸収を示して増加するが通常の二次相転移臭がみられる入型を示さず、phase IIIで α は異常に増加するのみである。これは phase IIIの中で domain wall の効果と考えられる。第10図は phase IIIの中の α の磁場依存性で、 $H \neq 0$ で domain wall の消失に伴い α は回復し、III-II boundary で臨界吸収による異常 peak を示す。 $H \parallel \langle 111 \rangle$ では domain wall 効果が大きく α の回復は遅く boundary でのみ観測された。 α の peak の $H-T$ 曲線が phase boundary と与える。



第9図. 超音波吸収係数 α の温度依存性.



第10図. α の磁場依存性.

終りに。CeB₆が示す dense Kondo 効果は Ce ion による Kondo site の性質が実験的に抽出され、明確化されつつあるが、更に系統的な研究により究明される必要がある。尚、従来から指摘されている試料依存性は phase II の磁化の振舞いに現われている。⁶⁾ 笠原氏の提供による Al-flux 法、アーク炉による合成法、帯電融法の各試料を測定した結果、phase II で全く同様の磁化過程を観測したので、試料依存性の問題は解決されたと考えている。

- 1). T. Komatsubara, et. al.: J. Mag. Mag. Mat. 15-18 (1980) 963.
- 2). M. Kawakami, et. al.: Solid State Commun. 36 (1980) 435.
- 3). Y. Aoki, et. al.: Solid State Commun. 36 (1980) 317.
- 4). A. Takase, et. al.: Solid State Commun. 36 (1980) 461.
- 5). N. Sato, et. al.: Valence Fluctuation in Solids (1981) 259.
- 6). S. Horn, et. al.: Z. Phys. B.-Condensed Matter 42 (1981) 125.